

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/005164

International filing date: 22 March 2005 (22.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-081715  
Filing date: 19 March 2004 (19.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 21 April 2005 (21.04.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日本特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2004年 3月19日  
Date of Application:

出願番号 特願2004-081715  
Application Number:

[ST. 10/C] : [JP2004-081715]

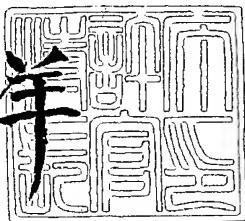
出願人 日本電気株式会社  
Applicant(s):

2005年 1月18日

特許長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川

洋



【書類名】 特許願  
【整理番号】 34103851  
【提出日】 平成16年 3月19日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 H01M 8/00  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7番 1号 日本電気株式会社内  
【氏名】 中村 新  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7番 1号 日本電気株式会社内  
【氏名】 佐々木 英明  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7番 1号 日本電気株式会社内  
【氏名】 関野 省治  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7番 1号 日本電気株式会社内  
【氏名】 小畠 肇  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7番 1号 日本電気株式会社内  
【氏名】 吉武 務  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7番 1号 日本電気株式会社内  
【氏名】 久保 佳実  
【特許出願人】  
【識別番号】 000004237  
【氏名又は名称】 日本電気株式会社  
【代理人】  
【識別番号】 100110928  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 速水 進治  
【電話番号】 03-5784-4637  
【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 138392  
【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1  
【包括委任状番号】 0110433

**【書類名】特許請求の範囲****【請求項 1】**

燃料極と、固体電解質膜と、酸化剤極と、絶縁性の保水部と、がこの順に積層され、前記保水部が前記酸化剤極の面の少なくとも一部を覆うことを特徴とする固体電解質型燃料電池。

**【請求項 2】**

請求項 1 に記載の固体電解質型燃料電池において、前記保水部は、前記酸化剤極に供給される酸化剤の供給経路を内部に有することを特徴とする固体電解質型燃料電池。

**【請求項 3】**

請求項 1 または 2 に記載の固体電解質型燃料電池において、前記保水部は多孔質体であって、前記多孔質体の孔を経路として前記酸化剤極に酸化剤が供給されるようにしたことを特徴とする固体電解質型燃料電池。

**【請求項 4】**

請求項 1 乃至 3 いずれかに記載の固体電解質型燃料電池において、前記保水部が前記酸化剤極の面に接して設けられたことを特徴とする固体電解質型燃料電池。

**【請求項 5】**

請求項 1 乃至 4 いずれかに記載の固体電解質型燃料電池において、シート状に形成された前記保水部を有することを特徴とする固体電解質型燃料電池。

**【請求項 6】**

請求項 5 に記載の固体電解質型燃料電池において、前記保水部が保水性の繊維シートを有することを特徴とする固体電解質型燃料電池。

**【請求項 7】**

請求項 1 乃至 6 いずれかに記載の固体電解質型燃料電池において、前記保水部の前記酸化剤極が設けられた側と反対側の面に、酸化剤の供給経路を有し前記保水部の乾燥を抑制する乾燥抑制層が設けられたことを特徴とする固体電解質型燃料電池。

**【請求項 8】**

請求項 7 に記載の固体電解質型燃料電池において、前記乾燥抑制層は、複数の導気孔を有することを特徴とする固体電解質型燃料電池。

**【請求項 9】**

請求項 7 に記載の固体電解質型燃料電池において、前記乾燥抑制層が気液分離膜であることを特徴とする固体電解質型燃料電池。

**【請求項 10】**

請求項 1 乃至 9 いずれかに記載の固体電解質型燃料電池において、複数の単位セルを備え、

一枚の固体電解質膜の一方の面に設けられた複数の前記燃料極と、

前記固体電解質膜の他方の面に、複数の前記燃料極にそれぞれ対向して設けられた複数の酸化剤極と、

を有し、

複数の前記酸化剤極の前記固体電解質膜と反対側の表面に、複数の前記酸化剤極を覆う保水部が設けられ、

前記単位セルが対向する一対の前記燃料極および前記酸化剤極と、前記保水部と、前記固体電解質膜とを含むことを特徴とする固体電解質型燃料電池。

**【請求項 11】**

請求項 1 乃至 10 いずれかに記載の固体電解質型燃料電池において、前記燃料極の前記固体電解質膜が設けられた側と反対側の面に、水の透過を制限する透過制限部が設けられたことを特徴とする固体電解質型燃料電池。

**【請求項 12】**

請求項 11 に記載の固体電解質型燃料電池において、前記透過制限部は、前記燃料極の表面を被覆する絶縁性のシート部材からなることを特徴とする固体電解質型燃料電池。

**【請求項 13】**

請求項11または12に記載の固体電解質型燃料電池において、前記燃料極に供給される液体燃料を収容する燃料容器が前記透過制限部に隣接して設けられたことを特徴とする固体電解質型燃料電池。

【請求項14】

請求項13に記載の固体電解質型燃料電池において、前記燃料容器は、前記透過制限部に対向して設けられ前記液体燃料を吸収する燃料吸収部材を有し、

前記透過制限部は、前記燃料吸収部材に隣接していない気体排出部を有することを特徴とする固体電解質型燃料電池。

【書類名】明細書

【発明の名称】固体電解質型燃料電池

【技術分野】

【0001】

本発明は、固体電解質型燃料電池に関する。

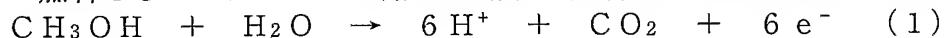
【背景技術】

【0002】

固体電解質型燃料電池は、燃料極および酸化剤極と、これらの中に設けられた固体電解質膜から構成され、燃料極には燃料が、酸化剤極には酸化剤が供給されて電気化学反応により発電する。燃料極および酸化剤極は、基材と、基材表面に備えられた触媒層とを含む。燃料としては、一般的には水素が用いられるが、近年、安価で取り扱いの容易なメタノールを原料として、メタノールを改質して水素を生成させるメタノール改質型や、メタノールを燃料として直接利用する直接型の燃料電池の開発も盛んに行われている。

【0003】

燃料としてメタノールを用いた場合、燃料極での反応は以下の式(1)のようになる。



【0004】

また、酸化剤極での反応は以下の式(2)のようになる。



【0005】

このように、直接型の燃料電池では、メタノール水溶液から水素イオンを得ることができるので、改質器などが不要になり、小型化及び軽量化を図ることができる。また、液体のメタノール水溶液を燃料とするため、エネルギー密度が非常に高いという特徴がある。

【0006】

このような構成の燃料電池の特性を向上させるためには、酸化剤極で発生した水を速やかに酸化剤極から蒸散させ、除去する必要がある。水分が酸化剤極にとどまると、酸化剤極の気体の拡散経路をふさぎ、気体の拡散が阻害される（フラッディング）ため、(2)式の反応効率が低下する。

【0007】

そこで、陽電極を構成する電極基材の表面に撥水性を付与することにより、陽電極の排水性を向上させる技術が提案されている（特許文献1）。

【0008】

ところが、酸化剤極で生成した水が酸化剤極から速やかに排出されて電池から除去されると、酸化剤極およびこれに隣接する固体電解質膜が乾燥する。酸化剤極が乾燥すると、そのプロトン伝導性が低下するため、上記式(2)の反応を効率よく行わせるためには、酸化剤極の乾燥を抑制する必要がある。また、固体電解質膜は、上記式(1)の反応で生成したプロトンを酸化剤極に伝達させ、上記式(2)の反応を効率よく行わせる役割を有する。固体電解質膜の乾燥は、固体電解質膜中のプロトン伝導性の低下につながる。このため、固体電解質膜が乾燥すると、プロトンの燃料極から酸化剤極の移動が抑制されてしまう。

【0009】

そこで、固体電解質膜の表面に垂直方向に複数の単位セルが積層された燃料電池スタックについて、フラッディングと膜の乾燥を抑制する技術が提案されている（特許文献2）。特許文献2では、酸化剤極上に、導電性材料として50重量%以上のカーボンブラックを分散させた稠密な保水性樹脂層を設けた構成が採用されている。また、保水性樹脂層にこれを貫通する貫通孔が設けることが記載されている。

【0010】

ところが、特許文献2では、保水層の外側に設けられたセパレータに設けられた流路に連通する貫通孔が空気極への空気の供給経路となる。このため、空気極の表面全面に均一に酸素を供給するという点で、改善の余地があった。

## 【0011】

また、スタックを固体電解質膜の表面に垂直方向に形成しているため、各単位セルからの集電の関係上、保水性樹脂層に比較的多量の導電性材料を含有させる必要があった。このため、材料の選択に制限が生じていた。また、特に燃料電池を携帯機器等に搭載しようとする場合、軽量化の観点でも改善の余地があった。

【特許文献1】特開平9-245800号公報

【特許文献2】特開2003-68330号公報

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0012】

以上のように、固体電解質を用いる燃料電池では、上記(1)式に示したように、電池内に水が供給され、それが電池反応に使用される。そして、上記(2)式の反応により水が生成する。さらに、電池を構成する部材間での水の移動が生じる。このため、固体高分子型の燃料電池では、短い時間における水の消費と生成を伴う条件において、酸化剤極におけるフラディングと過度の乾燥を抑制する必要がある。このため、酸化剤極の過度の乾燥を抑制し、酸化剤極における電池反応に必要なプロトン伝導性を充分に確保する必要がある。さらに、電池反応に必要な酸化剤を酸化剤極に充分に供給する必要がある。このため、酸化剤の拡散経路を充分に確保する必要がある。

## 【0013】

これらのことから、固体電解質を用いる燃料電池に特有の課題であった。そして、その特性を向上させるためには、単に酸化剤極の排水性を向上させるといった従来の方法と異なる設計思想が必要であった。

## 【0014】

本発明は上記事情を踏まえてなされたものであり、その目的は、燃料電池の出力特性を向上させる技術を提供することにある。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0015】

本発明によれば、燃料極と、固体電解質膜と、酸化剤極と、絶縁性の保水部と、がこの順に積層され、前記保水部が前記酸化剤極の面の少なくとも一部を覆うことを特徴とする固体電解質型燃料電池が提供される。

## 【0016】

本発明の固体高分子型燃料電池においては、燃料極、固体電解質膜、酸化剤極、および絶縁性の保水部がこの順に積層されている。そして、保水部が酸化剤極の面の少なくとも一部を覆っている。このため、酸化剤の透過性を充分に確保しつつ、酸化剤極の外側において水を確実に保持することができる。また、面内の水分分布を均質化することができる。よって、酸化剤極におけるフラッディングを抑制しつつ、酸化剤極の過度の乾燥を抑制することができる。また、保水部が絶縁性であるため、材料選択の幅が広く、保水性と酸化剤の透過性に優れた構成を安定的に得ることができる。したがって、酸化剤極における電池反応が効率よく安定的に行わせることができるために、燃料電池の出力特性を向上させることができる。

## 【0017】

本発明の固体電解質型燃料電池において、前記保水部は、前記酸化剤極に供給される酸化剤の供給経路を内部に有する構成とすることができます。固体電解質を用いる燃料電池では、固体電解質膜自体が水分を保持する機能をある程度有している一方、上記式(2)の反応を効率よく行わせるための酸素の透過性の確保が重要である。このような構成とすれば、保水部内で酸化剤を好適に拡散させることができる。このため、保水部を経由して酸化剤極の面方向に一様に酸化剤が供給することができる。よって、酸化剤極における電池反応を面内で一様に生じさせることができる。したがって、電池の出力特性を安定化することができる。

## 【0018】

本発明の固体電解質型燃料電池において、前記保水部は多孔質体であって、前記多孔質体の孔を経路として前記酸化剤極に酸化剤が供給されるようにしてもよい。ここで、多孔質体は、保水部の両面に連通し、面内に広がる孔が内部に形成された材料を指す。孔は、保水部の面内に一様にはりめぐらされた酸化剤の供給経路である。保水部を多孔質体とすることにより、酸化剤極の面に酸化剤をより一層確実に供給することができる。

【0019】

ここで、酸化剤極に接して設けられる態様は、保水性の材料が酸化剤極に直接接するものであってもよい。また、保水部と酸化剤極との間の酸化剤および水の移動を阻害しない材料を介して接していてもよい。たとえば、本発明の固体電解質型燃料電池において、前記保水部が前記酸化剤極の面に接して設けられた構成とすることができます。こうすることにより、酸化剤極における電極反応に充分な酸化剤を酸化剤極の表面全面に一様に供給することができる。また、酸化剤極を確実に被覆することができる。このため、酸化剤極で生成した水を保水部に移動させて確実に保持しつつ、酸化剤極の過度の乾燥を抑制することができる。

【0020】

本発明の固体電解質型燃料電池において、シート状に形成された前記保水部を有する構成とすることができる。こうすることにより、簡素な構成で酸化剤極の少なくとも一部を確実に被覆することができる。このため、酸化剤極の過度の乾燥を好適に抑制することができる。

【0021】

本発明の固体電解質型燃料電池において、前記保水部が保水性の繊維シートを有してもよい。こうすることにより、保水部の保水性を充分に確保することができる。

【0022】

本発明の固体電解質型燃料電池において、前記保水部の前記酸化剤極が設けられた側と反対側の面に、酸化剤の供給経路を有し前記保水部の乾燥を抑制する乾燥抑制層が設けられた構成とすることができます。こうすることにより、酸化剤の供給経路を確保しつつ、保水部に保持された水が表面から蒸散し、燃料電池が乾燥するのを抑制することができる。このため、燃料電池の出力特性をより一層安定化することができる。

【0023】

本発明の固体電解質型燃料電池において、前記乾燥抑制層は、複数の導気孔を有する板状部材であってもよい。こうすることにより、簡素な構成で保水部の乾燥を好適に抑制することができる。

【0024】

本発明の固体電解質型燃料電池において、前記乾燥抑制層が気液分離膜であってもよい。こうすることにより、乾燥抑制層における水の透過を確実に抑制しつつ、酸化剤を確実に電池内部に供給することができる。

【0025】

本発明の固体電解質型燃料電池において、複数の単位セルを備え、一枚の固体電解質膜の一方の面に設けられた複数の前記燃料極と、前記固体電解質膜の他方の面に、複数の前記燃料極にそれぞれ対向して設けられた複数の酸化剤極と、を有し、複数の前記酸化剤極の前記固体電解質膜と反対側の表面に、複数の前記酸化剤極を覆う保水部が設けられ、前記単位セルが対向する一対の前記燃料極および前記酸化剤極と、前記保水部と、前記固体電解質膜とを含んでもよい。

【0026】

この構成によれば、一枚の固体電解質膜の面内に、複数の単位セルを集積化することができる。また、複数の前記酸化剤極を覆う保水部が設けられるため、単位セル間で水分保持量を均質化することができる。このため、単位セル間の特性のばらつきを低減することができる。よって、簡素な構成で出力特性にすぐれた固体電解質型燃料電池を安定的に得ることができる。

【0027】

本発明の固体電解質型燃料電池において、前記燃料極の前記固体電解質膜が設けられた側と反対側の面に、水の透過を制限する透過制限部が設けられた構成とすることができる。こうすることにより、水を含む燃料が燃料極に供給される系において、水の供給を制限することができる。このため、燃料の浪費を抑制することができる。

#### 【0028】

本発明の固体電解質型燃料電池において、前記透過制限部は、前記燃料極の表面を被覆する絶縁性のシート部材からなる構成とすることができる。こうすれば、簡素な構成で燃料極への水の供給を好適に制限することができる。

#### 【0029】

本発明の固体電解質型燃料電池において、前記燃料極に供給される液体燃料を収容する燃料容器が前記透過制限部に隣接して設けられてもよい。こうすることにより、燃料容器に収容された液体燃料を、透過制限部を経由して確実に燃料極に供給することができる。また、燃料電池を小型化することができる。

#### 【0030】

本発明の固体電解質型燃料電池において、前記燃料容器は、前記選択透過部に対向して設けられ前記液体燃料を吸収する燃料吸収部材を有し、前記選択透過部は、前記燃料吸収部材に隣接していない気体排出部を有する構成であってもよい。こうすれば、燃料極で生成する二酸化炭素等の気体を気体排出部から燃料極の外部に確実に排出することができる。このため、燃料極中の燃料の移動経路を充分に確保することができる。よって、燃料電池の出力特性を安定化することができる。

#### 【0031】

なお、これらの各構成の任意の組み合わせや、本発明の表現を方法、装置などの間で変換したものもまた本発明の態様として有効である。

#### 【発明の効果】

#### 【0032】

以上説明したように、本発明によれば、燃料電池の出力特性を向上させる技術が実現される。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0033】

以下、本発明の実施の形態について、図面を用いて説明する。なお、すべての図面において、共通の構成要素には同じ符号を付し、適宜説明を省略する。

#### 【0034】

##### (第一の実施形態)

図1は、本実施形態に係る燃料電池の単セル構造1387の構成を示す断面図である。図1において、単セル構造1387は、燃料極102、酸化剤極108、固体電解質膜114、および保水層1388を含む。また、単セル構造1387を構成する燃料極102に接して燃料容器425が設けられている。

#### 【0035】

単セル構造1387の燃料極102には、燃料容器425に収容された燃料124が供給される。また、各単セル構造1387の酸化剤極108には、酸化剤126が供給される。燃料124としては、メタノール、エタノール、ジメチルエーテル、または他のアルコール類、シクロパラフィン等の液体炭化水素等、ホルマリン、ギ酸、あるいはヒドラン等の液体燃料を用いることができる。液体燃料は、水溶液とすることができます。また、燃料124にはアルカリを加えることもできる。これにより、水素イオンのイオン伝導性を高めることができる。酸化剤126としては、通常、空気を用いることができるが、酸素ガスを供給してもよい。

#### 【0036】

保水層1388は、単セル構造1387中で基体110の固体電解質膜114と反対側の面に接して設けられている。単セル構造1387を有する燃料電池において、保水層1388の表面全面が露出構成であってもよく、また、保水層1388が露出するような酸

化剤126の供給経路を有する構成であってもよい。

【0037】

保水層1388は層内に水を保持することが可能である。また、保水層1388の表面は親水性とすることができます。こうすれば、基体110中の水を積極的に保水層1388に移動させ、保水層1388中に保持することができます。このため、酸化剤極側触媒層112における電池反応で発生した水が基体110から保水層1388に効率よく受け渡される。このため、基体110中に水が滞留することの抑制が図られる。

【0038】

また、酸化剤極108の外側に設けられた保水層1388が水を保持するため、単セル構造101の酸化剤極108の側からの水の蒸散を抑制することができます。このため、酸化剤極側触媒層112および固体電解質膜114の乾燥を抑制することができます。よって、固体電解質膜114においてプロトンを効率よく移動させることができます。したがって、燃料極102で発生したプロトンを速やかに酸化剤極108に移動させることができます。そして、酸化剤極108におけるプロトン伝導性を充分に確保することができます。このため、電池特性を向上させることができます。

【0039】

また、保水層1388は、層の両面を連通させる微細な通気孔を有する。この通気孔は、酸化剤126のガスを透過させる機能を有する。このため、酸化剤極108に酸化剤126が充分に供給される。

【0040】

基体110の表面に保水層1388を設ける構成として、たとえば、単セル構造1387において、基体110の外側に保水性を有するシート部材を設ける構成が挙げられる。このような保水層1388は、たとえば、保水性ポリマーなどの保水性を有する繊維材料により形成されたシートを用いることができる。繊維シートとすることにより、水分を保持する性質を充分確保しつつ、シート中の細孔径を大きくすることができます。このため、酸化剤極108に酸化剤126を確実に供給することができる。また、保水性ポリマーにより形成された合繊、または粉体状の保水性ポリマーと綿の混合粉体を吸水性の台紙の間に挟んで圧着して形成されたシートにより構成されてもよい。また、金属メッシュ等の多孔質の基材の表面に保水性ポリマー層が被覆された構成とすることもできる。

【0041】

保水性ポリマーを用いる場合、その材料に特に制限はなく、既知の保水性ポリマーを用いることができるが、酸化剤極108に存在する成分に対する耐薬品性に優れたものが好ましく用いられる。保水性ポリマーとしては、たとえば水の吸水量が自重の20質量%以上のものを用いることができる。こうすることにより、単セル構造1387からの水の蒸散を好適に抑制することができる。よって、酸化剤極側触媒層112および固体電解質膜114の乾燥を確実に抑制することができる。また、基体110中の水を単セル構造1387側に効率よく移動させ、保水層1388中に保持することができる。

【0042】

保水性ポリマーとして、たとえばセルロース等の多糖系、ポリアクリル酸ナトリウム塩等のポリアクリル酸ソーダ系、ポリアクリルアミド等のアクリルアミド系、ポリN-ビニルアセトアミド、ポリN-ビニルホルムアミド、ポリビニルアルコール、ポリエチレンオキサイド、ポリエチレングリコール、ポリN-ビニルピロリドン、架橋型アクリル共重合体、ポリエステル、ゼラチン、スチレンジビニルベンゼン系、ポリグルタミン酸、ポリアクリル酸、酢酸ビニルアクリル等、またはこれらの共重合体が例示される。さらに、多糖系のポリマーとして、上記の他、寒天やデンプンを用いることができる。また、グルコース、ラムノース、フコース、グルクロン酸のモノマーから構成された多糖類を用いることもできる。これらは単独または複合して用いることもできる。これらの保水性ポリマーは、通常ある程度の吸水性を有するため、基体110からの水の排出を好適に促進することができる。

【0043】

上記のうち、たとえばバイオセルロース、綿花セルロース等のセルロース纖維により構成されたセルロース纖維シート等の保水性纖維シートは、保水性および酸素透過性のバランスにすぐれるため、好ましく用いることができる。セルロース纖維シートとして、具体的には、たとえば、ベンコット（旭化成社製）（登録商標）等を用いることができる。

#### 【0044】

保水層1388は、酸化剤126を透過させる通気孔を有する。乾燥時の通気孔の孔径は、たとえば50nm以上、好ましくは100nm以上、より好ましくは500nm以上とすることができる。こうすることにより、酸化剤126を確実に酸化剤極108に供給することができる。また、通気孔の孔径は、たとえば10μm以下、好ましくは5μm以下、さらに好ましくは1μm以下とすることができる。さらに具体的には、たとえば、通気孔の孔径を1μmとすることができる。こうすることにより、単セル構造1387からの水の蒸発を確実に抑制することができる。なお、通気孔の孔径は、たとえばSEM観察により求められる。

#### 【0045】

また、保水層1388の空隙率は、たとえば30%以上、好ましくは50%以上とすることができる。こうすることにより、酸化剤126を酸化剤極108に確実に供給する構成とすることができる。また、保水層1388の空隙率は、たとえば90%以下、好ましくは85%以下とすることができる。こうすることにより、単セル構造1387からの水の蒸発を確実に抑制することができる。なお、保水層1388の空隙率は、たとえばSEM観察により求めることができる。

#### 【0046】

また、保水層1388の厚さは、たとえば乾燥時で1μm以上、好ましくは30μm以上とすることができる。こうすることにより、水を確実に保持し、単セル構造1387からの水の蒸発を確実に抑制することができる。また、保水層1388は、酸化剤126を効率よく透過させる必要があるため、層厚を薄くすることが望まれる。たとえば、保水層1388の乾燥時の厚さを500μm以下、好ましくは100μm以下とすることができます。たとえば、セルロース纖維シートを用いる場合、このような保水層1388を安定的に形成することができる。

#### 【0047】

たとえば保水層1388に纖維シートを用いる場合、たとえば、纖維の線径を10~50μm程度とすることができます。また、シートに形成される通気孔の孔径をたとえば0.5~3μm程度、空隙率をたとえば70~90%程度、厚さをたとえば30~300μm程度とすることができます。

#### 【0048】

単セル構造1387では、酸化剤極108の外側を覆う保水層1388を設けることにより、酸化剤極108への酸化剤126の供給および基体110からの水の排出性を確保しつつ、酸化剤極側触媒層112および固体電解質膜114の過度の乾燥を確実に抑制することができる。このため、単セル構造1387は優れた出力を長期間安定的に発揮することができる。

#### 【0049】

ここで、上記特許文献2では、セルロースの三次元架橋物と炭素粒子からなる保水層が形成され、その表面に貫通孔が設けられている。貫通孔は、保水層を垂直に貫く一方向に形成されている。そして、保水層の外側全面を被覆するセパレータから、保水層中の貫通孔を通じて酸化剤ガスが供給される。

#### 【0050】

一方、本実施形態に係る単セル構造1387では、保水層1388が酸化剤極108の外側全面に設けられている。このため、面内における水の分布を均質化することができる。また、単セル構造1387では、その内部に微細な酸化剤126の供給経路が一様に形成されている。また、保水層1388の表面全体が酸化剤126に接する構造となっている。このため、空気中の酸素を酸化剤126として多孔質の保水層1388の表面全面か

ら酸化剤極108に供給される。よって、酸化剤極108の表面全面に一様に酸化剤126を供給することが可能であり、酸化剤極108での酸化剤126の供給のばらつきを抑制することができる。したがって、酸化剤極108の全面で電池反応を均一に生じさせることができる。

#### 【0051】

また、酸化剤極108から保水層1388に移動した水が保水層1388に好適に保持されるため、単セル構造1387の外部への水の蒸散を抑制することができる。このため、酸化剤極側触媒層112および固体電解質膜114の過度の乾燥を抑制することができる。

#### 【0052】

このように、単セル構造1387は酸化剤極108の外側の表面に接して設けられ、酸化剤極108を被覆する保水層1388を有するため、燃料電池における電池反応に必要な酸化剤126の供給経路を確保しつつ、酸化剤極108におけるフラッディングを抑制するとともに、酸化剤極108の過度の乾燥を抑制することができる。このため、優れた出力を長期間安定的に発揮することができる。

#### 【0053】

なお、図1においては保水層1388が基体110の酸化剤極側触媒層112と接していない面の全面を被覆しているが、保水層1388は基体110の表面の一部を被覆してもよい。基体110の全面に保水層1388が設けられた構成とすることにより、保水層1388で水を確実に保持し、酸化剤極108の過度の乾燥を好適に抑制することができる。このため、酸化剤極側触媒層112および固体電解質膜114の乾燥をさらに抑制することができる。また、保水層1388の全面から酸化剤126が吸入されるため、酸化剤極108の全面で電池反応を均一に生じさせることができる。

#### 【0054】

固体電解質膜114は、燃料極102と酸化剤極108を隔てるとともに、両者の間で水素イオンを移動させる役割を有する。このため、固体電解質膜114は、水素イオンの伝導性が高い膜とすることができます。また、化学的に安定であって機械的強度が高い膜とすることができます。固体電解質膜114を構成する材料としては、スルfonyl基、リン酸基等の強酸基や、カルボキシル基等の弱酸基等の極性基を有する有機高分子が好ましく用いられる。こうした有機高分子として、スルfonyl化ポリ(4-フェノキシベンゾイル-1,4-フェニレン)、アルキルスルfonyl化ポリベンゾイミダゾール等の芳香族縮合系高分子；

スルfonyl基含有パーフルオロカーボン(ナフィオン(デュポン社製)(登録商標)、アシプレックス(旭化成社製))；

カルボキシル基含有パーフルオロカーボン(フレミオンS膜(旭硝子社製)(登録商標))；

等が例示される。

#### 【0055】

燃料極102および酸化剤極108は、それぞれ、触媒を担持した炭素粒子と固体電解質の微粒子とを含む燃料極側触媒層106および酸化剤極側触媒層112をそれぞれ基体上に形成した構成とすることができます。

#### 【0056】

燃料極側触媒層106の触媒としては、白金、金、銀、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、オスミウム、イリジウム、コバルト、ニッケル、レニウム、リチウム、ランタン、ストロンチウム、イットリウム、またはこれらの合金等が例示される。酸化剤極108に用いる酸化剤極側触媒層112の触媒としては、燃料極側触媒層106と同様のものを用いることができ、上記例示物質を使用することができる。なお、燃料極側触媒層106および酸化剤極側触媒層112の触媒は同じものを用いても異なるものを用いてもどちらでもよい。

#### 【0057】

燃料極102、酸化剤極108とともに、基体としては、カーボンペーパー、カーボンの成形体、カーボンの焼結体、焼結金属、発泡金属等の多孔性基体を用いることができる。

【0058】

燃料極102および酸化剤極108は、それぞれ、触媒を担持した炭素粒子と固体電解質の微粒子とを含む燃料極側触媒層106および酸化剤極側触媒層112をそれぞれ基体104および基体110上に形成した構成とすることができる。

【0059】

燃料極側触媒層106の触媒としては、白金、金、銀、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、オスミウム、イリジウム、コバルト、ニッケル、レニウム、リチウム、ランタン、ストロンチウム、イットリウム、またはこれらの合金等が例示される。酸化剤極108に用いる酸化剤極側触媒層112の触媒としては、燃料極側触媒層106と同様のものを用いることができ、上記例示物質を使用することができる。なお、燃料極側触媒層106および酸化剤極側触媒層112の触媒は同じものを用いても異なるものを用いてもどちらでもよい。

【0060】

燃料極側触媒層106および酸化剤極側触媒層112における固体電解質の微粒子は、同一のものであっても異なるものであってもよい。ここで、固体電解質の微粒子は、固体電解質膜114と同じ材料を用いることができるが、固体電解質膜114とは異なる材料や、複数の材料を用いることもできる。

【0061】

燃料極102、酸化剤極108とともに、基体104および基体110としては、カーボンペーパー、カーボンの成形体、カーボンの焼結体、焼結金属、発泡金属、金属繊維シート等の導電性多孔性材料を用いることができる。このうち、焼結金属、発泡金属、金属繊維シート等の金属を用いることにより、燃料極102および酸化剤極108の集電特性を向上させることができる。

【0062】

燃料極102において、基体104における二酸化炭素の気泡の滞留は発電効率の低下の原因となる。この気泡滞留の原因は、気泡を覆う水分が基体104に付着して留まっているためである。そこで、基体104の表面に、親水性コート材あるいは疎水性コート材による表面処理を行うことができる。親水性コート材により表面処理することで、基体104の表面における燃料の流動性が高められる。これにより二酸化炭素の気泡は燃料124とともに移動しやすくなる。また、疎水性コート材により処理することにより、基体104の表面に、気泡の形成の原因となる水分の付着を軽減できる。したがって、基体104の表面上における気泡の形成を軽減できる。親水性コート材としては、例えば酸化チタン、酸化ケイ素などが挙げられる。一方、疎水性コート材としては、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)、シランなどが例示される。基体110の表面も同様に表面処理を行ってもよい。

【0063】

単セル構造1387の作製方法は特に制限がないが、たとえば以下のようにして作製することができる。

【0064】

まず、燃料極102および酸化剤極108を作製する。これらの触媒電極は、たとえば、カーボンペーパーなどの基体上に、触媒物質と固体高分子電解質とを含む触媒層を形成することにより得られる。まず炭素粒子へ触媒を担持する。この工程は、一般的に用いられている含浸法によって行うことができる。次に触媒を担持させた炭素粒子と固体高分子電解質を溶媒に分散させ、ペースト状とした後、これを基体104または基体110に塗布、乾燥させることによって燃料極側触媒層106または酸化剤極側触媒層112が形成された燃料極102および酸化剤極108を作製することができる。

【0065】

基体104または基体110へのペーストの塗布方法については特に制限がないが、た

とえば、刷毛塗り、スプレー塗布、およびスクリーン印刷等の方法を用いることができる。ペーストは、約  $1 \mu\text{m} \sim 2 \text{ mm}$  の厚さで塗布される。ペーストを塗布した後、使用的固体高分子電解質に応じた加熱温度および加熱時間で加熱して乾燥させる。

#### 【0066】

固体電解質膜114は、用いる材料に応じて適当な方法を採用して作製することができる。たとえば、有機高分子材料を溶媒に溶解ないし分散した液体を、ポリテトラフルオロエチレン等の剥離性シート等の上にキャストして乾燥させることにより得ることができる。

#### 【0067】

得られた固体電解質膜114を、燃料極102および酸化剤極108で挟み、ホットプレスし、膜-触媒電極接合体を得る。このとき、両電極の触媒が設けられた面と固体電解質膜114とが対向するようにする。ホットプレスの条件は、材料に応じて選択されるが、たとえば、固体高分子電解質の軟化温度やガラス転位温度を超える温度とする。具体的には、たとえば、温度100～250°C、圧力5～100 kgf/cm<sup>2</sup>、時間10～300秒程度とする。

#### 【0068】

こうして得られた膜-触媒電極接合体の酸化剤極108の表面に保水層1388を設ける。たとえば、酸化剤極108の表面に保水性を有するシート部材を接着してもよい。また、酸化剤極108の表面に多孔質基材を配置し、その表面に保水性ポリマーの溶液を塗布し、乾燥させてもよい。また、膜-触媒電極接合体と保水層1388とを枠体の中に配置し、リベットで固定してもよい。

#### 【0069】

こうして、膜-触媒電極接合体の酸化剤極側に保水層1388が設けられた単セル構造1387が得られる。

#### 【0070】

図2は、単セル構造1387を有する燃料電池の構成の一例を示す図である。図2に示した燃料電池1389は、複数の単セル構造1387と、複数の単セル構造1387に配して設けられた燃料容器811と、燃料容器811に燃料を供給するとともに、燃料容器811を循環した燃料を回収する燃料タンク851とを含む。燃料容器811と燃料タンク851とは、燃料通路854および燃料通路855を介して連結される。なお、図2の燃料容器811は、図1の燃料容器425に対応する。

#### 【0071】

本実施形態において、燃料容器811には、燃料通路854を介して燃料が供給される。燃料は、燃料容器811内に設けられた複数の仕切板853に沿って流れ、複数の単セル構造1387に順次供給される。複数の単セル構造1387を循環した燃料は、燃料通路855を介して燃料タンク851に回収される。

#### 【0072】

図3は、図2のA-A'断面図である。図3に示したように、燃料電池1389においては、1枚の固体電解質膜114の一方の面に複数の燃料極102が設けられ、他方の面に複数の酸化剤極108が設けられており、複数の単セル構造1387が固体電解質膜114を共有し、同一の平面内に配置された構成となっている。それぞれの単セル構造1387を構成する酸化剤極108に接して保水層1388が形成されている。この構成において、保水層1388の材料は絶縁性とすることもできるし導電性とすることもできる。また、燃料容器811が燃料極102の外側を覆い囲うように設けられており、燃料容器811中に収容または供給された液体燃料が燃料極102に直接供給される。

#### 【0073】

図4は、図2のA-A'断面の別の構成を示す図である。図4の構成は基本的には図3と同様であるが、複数の酸化剤極108の表面に1枚のシート状の保水層1388が形成されており、保水層1388を複数の単セル構造1387で共有する構成となっている点が異なる。この構成では、上記特許文献2のような電極の表面に垂直方向にスタックさせ

た構造と異なり、保水層1388が集電機能を有する必要がない一方、単セル構造1387間の電気的な導通を防ぐことが必要となるため、保水層1388を絶縁性の材料で構成する。保水層1388を絶縁性の材料とすることにより、絶縁性の有機高分子材料の繊維シート等を用いることが可能となり、材料の選択の幅が広がる。このため、水の透過を制限しつつ、酸化剤126を充分に供給可能な構成の燃料電池1389を安定的に得ることができる。

#### 【0074】

このような構成とすれば、固体電解質膜114の表面に複数の酸化剤極108を形成した後、酸化剤極108上に一枚の保水性シートを配することによりそれぞれの単セル構造1387に容易に保水層1388を設けることができる。このため、保水層1388を有する単セル構造1387の平面スタック構造を安定的に形成することができる。

#### 【0075】

また、一つの保水層1388が複数の単セル構造1387上に形成されているため、複数の単セル構造1387の酸化剤極108の側の表面を同程度に保水することができる。また、複数の酸化剤極108の表面の水分濃度を一様にすることができる。このため、複数の単セル構造1387で発電特性がばらつくのを好適に抑制することができる。

#### 【0076】

なお、本実施形態に係る燃料電池1389において、燃料タンク851は、燃料容器811を含む燃料電池本体と着脱可能に構成されたカートリッジとすることもできる。また、このとき、燃料供給系は、燃料容器811と燃料タンク851に連通する混合タンクを有してもよい。たとえば、燃料通路854および燃料通路855に連通する混合タンクを設け、燃料124の循環経路を構成することができる。また、酸化剤極108で生成した水のうち、保水層1388に保持させた残りの水を混合タンクに回収する経路を設けることができる。こうすれば、各単セル構造1387を通過した残存燃料や、酸化剤極108で発生した水のうち、保水層1388に保持させた残りの水を燃料通路855から混合タンクに回収することができる。そして、燃料タンク851から燃料通路854を経由して供給される燃料と混合し、単セル構造1387に供給するのに好適な燃料成分濃度の燃料を調製した後、これを燃料容器811に供給することができる。

#### 【0077】

また、燃料通路854および燃料通路855には、燃料を移動させるポンプを設けることができる。ポンプとして、たとえば消費電力が非常に小さい小型の圧電モーター等の圧電素子を用いることができる。また、燃料電池1389は、さらに、ポンプの動作を制御する制御部を有することができる。

#### 【0078】

##### (第二の実施形態)

図5は、本実施形態に係る燃料電池の構成単位である単セル構造1391の構成を模式的に示す断面図である。図5に示した単セル構造1391の構成は基本的には図1の単セル構造1387と同様であるが、保水層1388の外側に、さらに乾燥防止層1390が設けられた点が異なる。

#### 【0079】

乾燥防止層1390は、酸化剤126を単セル構造1391内に供給しつつ、保水層1388の外側を保護し、保水層1388中が表面から乾燥することを抑制する層である。具体的には、乾燥防止層1390を、多数の酸化剤供給孔が設けられた板状部材とするとができる。このようにすれば、板状部材の開口率を調節することにより、酸化剤126と水の透過を容易に調整することができる。なお、乾燥防止層1390は、面を貫通する酸化剤126の供給経路を有するため、このような経路が設けられていないセパレータ等の部材は含まない。

#### 【0080】

たとえば、酸化剤供給孔を有するアルミニウム板、ステンレス板等の金属板や、酸化剤供給孔を有するPTFE板等のプラスチック板としてもよい。酸化剤供給孔の孔径は、た

とえば $1\mu\text{m}$ 以上、好ましくは $10\mu\text{m}$ 以上、とすることができる。こうすることにより、酸化剤 $126$ を確実に酸化剤極 $108$ に供給することができる。また、酸化剤供給孔の孔径は、たとえば $5000\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $100\mu\text{m}$ 以下とすることができる。こうすることにより、保水層 $1388$ に確実に水を保持させておくことができる。

#### 【0081】

また、板状部材の開口率を、たとえば $10\%$ 以上、好ましくは $30\%$ 以上とすることができる。こうすることにより、酸化剤 $126$ を酸化剤極 $108$ に確実に供給する構成とすることができる。また、保水層 $1388$ の開口率は、たとえば $90\%$ 以下、好ましくは $70\%$ 以下とすることができる。こうすることにより、保水層 $1388$ において水を確実に保持することができる。

#### 【0082】

単セル構造 $1391$ では、保水層 $1388$ の外側に接して乾燥防止層 $1390$ が設けられているため、保水層 $1388$ の表面の乾燥を抑制し、保水層 $1388$ にさらに確実に水を保持させておくことができる。よって、保水層 $1388$ に隣接する酸化剤極 $108$ および固体電解質膜 $114$ の乾燥をさらに確実に抑制することができる。

#### 【0083】

また、乾燥防止層 $1390$ は複数の酸化剤供給孔を有するため、保水層 $1388$ に確実に酸化剤 $126$ を供給することができる。そして、酸化剤供給孔から単セル構造 $1391$ に供給された酸化剤 $126$ は、保水層 $1388$ にて酸化剤極 $108$ の外面に拡散することができる。このため、酸化剤極 $108$ の表面全面に均等に酸化剤 $126$ を供給することができる。このため、酸化剤極 $108$ の全面で電極反応を安定的に生じさせることができる。

#### 【0084】

図6および図7は、単セル構造 $1391$ を有する燃料電池の構成を示す断面図である。図6および図7は、それぞれ図3および図4に示した燃料電池の各単セル構造 $1387$ を構成する保水層 $1388$ の外側に乾燥防止層 $1390$ が独立に設けられた構成である。

#### 【0085】

図8および図9は、単セル構造 $1391$ を有する燃料電池の別の構成を示す断面図である。図8および図9は、それぞれ図3および図4に示した燃料電池の各単セル構造 $1387$ を構成する保水層 $1388$ の外側に乾燥防止層 $1390$ が一枚の板状部材として形成された構成である。乾燥防止層 $1390$ を複数の単セル構造 $1391$ の外側に設けられた一枚の板状部材とすることにより、保水層 $1388$ においてより一層確実に水を保持することができる。特に、保水層 $1388$ が一枚のシート状に構成されている場合においても、図9の構成とすれば、保水層 $1388$ の外面全面に乾燥防止層 $1390$ を設けることができる。また、電池構成を簡素化することができる。なお、図9において、単セル構造 $1391$ 間の電気的な導通を防ぐため、乾燥防止層 $1390$ を絶縁性の材料で構成する。

#### 【0086】

なお、本実施形態において、乾燥防止層 $1390$ を気液分離膜により構成することもできる。気液分離膜は、液体である水と気体である酸化剤 $126$ とに異なる表面張力を持たせ得る材料で構成することができる。または、多孔質体の表面をこのような材料で覆うことによって得られる部材を用いることもできる。気液分離膜には、たとえば撥水性の材料を用いることができる。具体的には、たとえば、ポリテトラフロロエチレン（以下、PTFEとも呼ぶ。）、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体（FEP）等のパーフルオロポリマー、ポリメタクリル酸 $1\text{H}$ 、 $1\text{H}$ -パーフルオロオクチル、ポリアクリル酸 $1\text{H}$ 、 $1\text{H}$ 、 $2\text{H}$ 、 $2\text{H}$ -パーフルオロデシル等のポリフルオロアルキルアクリレート、ポリフッ化ビニル、ポリフッ化エチレンプロピレン等のフルオロオレフインが挙げられる。また、ポリ塩化ビニリデン、ポリアセタール、ブタジエンとアクリルニトリルとの共重合体樹脂等を用いることもできる。

#### 【0087】

このうち、PTFE等のパーフルオロポリマーは、酸素の選択透過性および成膜特性の

バランスに優れる点で好ましく用いられる。気液分離膜は、酸素を効率よく透過させる必要があるため、膜厚を薄くすることが望まれる。膜の物性にもよるが、通常、5 μm以下の薄膜に形成することが望まれる。P T F E 等のパーフルオロポリマーを用いた場合、このような薄膜を安定的に形成することができる。また、保水層1388に酸素を確実に供給するための酸素供給孔を気液分離膜に設けた構成とすることもできる。

### 【0088】

#### (第三の実施形態)

以上の実施形態においては、保水層1388における保水機能により、酸化剤極側触媒層112および固体電解質膜114が好適に湿潤した状態が保持される。このため、固体電解質膜114に接して設けられた燃料極側触媒層106にも水が確実に供給され、湿潤状態が保持される。よって、燃料極102におけるプロトン伝導性が好適に確保された構成となっている。

### 【0089】

一方、燃料極102には、燃料容器425中の燃料124が直接供給される。このとき、電池反応により消費される燃料成分よりも過剰な燃料成分の供給が行われると、燃料124に含まれる水や燃料成分の浪費につながる。図2の燃料電池1389は燃料通路855を有しているため、燃料極102を通過した液体は燃料タンク851に回収されるが、このような回収経路を設けない構成や、酸化剤極108で生成した水の一部を回収しない構成では、燃料極102への過剰な供給による燃料124中の水や燃料成分の浪費の影響が比較的大きい。

### 【0090】

そこで、本実施形態では、以上の実施形態に記載の燃料電池において、燃料極102への燃料124の供給を制限する構成を付与した態様について説明する。以下、第二の実施形態に記載の単セル構造1391を基本構成とする場合を例に説明する。

### 【0091】

図10は、本実施形態に係る燃料電池の構成単位である単セル構造の構成を模式的に示す断面図である。図10に示した単セル構造1393の構成は、図5に示した単セル構造1391において、燃料極102の外側に接してさらに制限透過層1392が設けられた構成である。

### 【0092】

制限透過層1392は、燃料容器425中の燃料124に含まれる水の燃料極102への移動を制限する膜である。たとえば、燃料124中の燃料成分がメタノールである場合、制限透過層1392はメタノール透過性よりも水透過性が低い材料とすることができる。

### 【0093】

制限透過層1392の材料として、撥水性の多孔質材料を用いることことができる。たとえば、燃料124中の燃料成分がメタノールのアルコールである場合、ポリテトラフルオロエチレンの多孔質膜、ポリエチレンの多孔質膜、またはポリイミドの多孔質膜等を用いることができる。このような膜を用いることにより、燃料124中のメタノールを基体104に優先的に透過させることができる。よって、水の浪費を抑制しつつ、燃料極102における電極反応を確実に生じさせることができる。

### 【0094】

また、図10の単セル構造1393では、酸化剤極108の外部に保水層1388および乾燥防止層1390が設けられているため、酸化剤極108の過度の乾燥が抑制される。このため、酸化剤極108に隣接する114およびこれに隣接する102の乾燥も抑制される。よって、制限透過層1392により燃料極102への水の供給が制限された構成であっても、電池反応に充分な水を燃料極102中に確保することができる。このため、燃料極102における電極反応を確実に生じさせることができる。

### 【0095】

図11は、単セル構造1393を有する燃料電池の構成を示す断面図である。図11は

、図9に示した燃料電池の各単セル構造1391を構成する燃料極102の外側に一枚のシート状の制限透過層1392が設けられた構成である。

#### 【0096】

なお、制限透過層1392はそれぞれの単セル構造1393を構成する燃料極102の表面に独立の部材として設けることもできる。図11に示したように制限透過層1392を一枚のシート状の部材とすることにより、燃料容器425から燃料極102への水の移動をより一層確実に抑制することができる。また、単セル構造1393の構成を簡素化することができる。

#### 【0097】

また、図11に示した燃料電池は、平面内に単セル構造1393を集積する構成であるため、制限透過層1392を絶縁性の材料としても導電性の材料としてもよい。制限透過層1392を絶縁性の材料とすることにより、有機高分子樹脂からなる膜などの材料の選択の幅が広がり、水の透過を制限しつつ、燃料成分を燃料極102に供給する構成の燃料電池を安定的に得ることができる。

#### 【0098】

##### (第四の実施形態)

第三の実施形態に記載の単セル構造1393(図10)において、制限透過層1392の外側に接して燃料吸収部材が設けられていてもよい。

#### 【0099】

図12は、本実施形態に係る燃料電池の構成単位である単セル構造の構成を模式的に示す断面図である。図12に示した単セル構造1394の構成は、図10に示した単セル構造1393において、制限透過層1392に隣接する燃料容器425が、制限透過層1392に対向しその外側に接する燃料吸収部1396を有する構成となっている。また、制限透過層1392の表面の周縁部分に、燃料吸収部1396と接触していない非接触部1395が形成されている。

#### 【0100】

燃料吸収部1396の材料は、液体燃料を吸収し、また液体燃料に対する耐食性を有する材料とすることができる。燃料吸収部1396は、発泡体などの多孔質材料で構成することができる。燃料吸収部1396の材料として、具体的には、たとえば、ポリウレタン、メラミン、ナイロンなどのポリアミド、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレートなどのポリエステル、セルロース、またはポリアクリロニトリルなどの樹脂を用いることができる。

#### 【0101】

制限透過層1392の外側に、燃料吸収部1396を当接させることにより、燃料容器425内の液体燃料の量が減少した際にも、燃料吸収部1396に吸収された液体燃料を制限透過層1392を経由して燃料極102に確実に供給することができる。このため、燃料電池をより一層安定的に運転することができる。また、カートリッジ内の液体燃料の液面の位置が変動した際にも、燃料電池を安定的に運転することができる。

#### 【0102】

また、制限透過層1392の一部が燃料吸収部1396に接していない非接触部1395が設けられている。こうすることにより、燃料極102において上記式(1)の反応により生成した二酸化炭素等の気体を非接触部1395から制限透過層1392の外部に効率よく排出することができる。このため、燃料極102中のこれらの気体が滞留するのを抑制することができる。このように、燃料吸収部1396との接觸部分から燃料124が燃料極102に効率よく供給されるとともに、燃料極102で生成した気体の通路が確保されるため、燃料124と気体の物質移動をさらに効率よく行うことができる。よって、燃料電池の出力特性を向上させることができる。

#### 【0103】

図13は、単セル構造1394を有する燃料電池の構成を示す断面図である。図13は、図12に示した燃料電池の各単セル構造1394を構成する一枚の制限透過層1392

の外側の表面に燃料吸収部1396が設けられた構成である。

【0104】

燃料容器811の壁面近傍が非接触部1395となっており、燃料極102で生成した気体は燃料極102から非接触部1395を通って気液分離膜1397を透過し、燃料容器811の外部に排出される。

【0105】

気液分離膜1397の材料は、たとえば、第二の実施形態で乾燥防止層1390として用いる気液分離膜の材料として例示したものとすることができる。気液分離膜1397を設けることにより、燃料容器811からの燃料124の漏出を抑制しつつ、燃料極102中の気体を効率よく排出することができる。

【0106】

以上、本発明を実施の形態に基づいて説明した。これらの実施の形態は例示であり、それらの各構成要素や各処理プロセスの組み合わせにいろいろな変形例が可能なこと、またそうした変形例も本発明の範囲にあることは当業者に理解されるところである。

【実施例】

【0107】

本実施例では、構成要素の異なる4種類の燃料電池を作製し、その出力特性の評価を行った。

【0108】

(燃料電池の作製)

ルテニウムー白金合金を担持したケッテンブラック100mgを水で失活させた後、デュポン社製5%ナフィオン溶液3mlを加え、超音波混合器で50℃にて3時間攪拌して触媒ペーストとした。上で用いた合金組成は50atm%Ruで、合金と炭素微粉末の重量比は1:1とした。このペーストを1cm×1cmのカーボンペーパー(TGP-H-120:東レ社製)上に2mg/cm<sup>2</sup>塗布し、130℃で乾燥させ、燃料極とした。また、触媒金属に白金を用い、燃料極と同様の方法を用いて酸化剤極を作製した。

【0109】

得られた触媒電極を、ナフィオン117(デュポン社製、登録商標)膜の両面に温度150℃、圧力10kgf/cm<sup>2</sup>(10秒間)の条件でヒートプレスし、得られた膜-触媒電極接合体を得た。

【0110】

得られた膜-触媒電極接合体を用いて、下記A～Dの構成の燃料電池を作製した。

電池A:燃料極の外側にPTFEシートを接着、

電池B:燃料極の外側にPTFEシートを接着、酸化剤極の外側にセルロース繊維シートと穴あき金属板をこの順に接着、

電池C:燃料極の外側にPTFEシートと燃料吸収材をこの順に接着、酸化剤極の外側にセルロース繊維シートと穴あき金属板をこの順に接着、

電池D:酸化剤極の外側にセルロース繊維シートと穴あき金属板をこの順に接着。

【0111】

ここで、セルロース繊維シートとして、膜厚200μm、細孔サイズ1μm、空隙率80%のセルロース繊維シートを用いた。また、穴あき金属板として、直径1000μmの孔を表面全面に設け、開口率80%としたステンレス板を用いた。また、PTFEシートとして、膜厚80μm、細孔サイズ300nmの多孔質PTFEシートを用いた。また、燃料吸収材として、ポリウレタンを用いた。

【0112】

(電池特性の評価)

電池A～電池Dの電池電圧の時間変化を測定した。得られた電池の燃料極に30v/v%メタノール水溶液を、酸化剤極には空気(1.1気圧、25℃)を、セル温度40℃にてそれぞれ供給した。燃料および酸素の流速はそれぞれ100ml/min、および100ml/minとした。それぞれの電池を電池性能評価装置にセットして、1.5A定電

流出力時の電池電圧を測定した。

【0113】

図14は、電池A～電池Dの電池電圧の経時変化を示す図である。図14より、酸化剤極の外側にセルロース繊維シートと穴あき金属板が設けられた電池B～電池Dは、電池Aに対して長期使用時の電池電圧の低下を抑制していることがわかる。

【0114】

次に、電池B～電池Dを比較すると、酸化剤極側のみの対策を行った電池Dに対し、燃料極側の対策をあわせて行った電池Bでは、長時間使用時の電池電圧の低下を顕著に抑制していることがわかる。そして、さらに燃料極側に燃料吸収材を設けた電池Cでは、電池電圧をさらに向上させ、その低下を抑制していることがわかる。

【0115】

なお、燃料極および酸化剤極のいずれについても対策を行わず、膜一触媒電極接合体のみを用いて同様の測定を行ったところ、電池Aの場合よりもさらに急速に出力が低下した。また、電池Dの初期のカーブを電池Aのカーブと比較すると、燃料極側のみ対策を行った電池Aは、使用開始初期の電池電圧の低下をある程度抑制していることがわかる。

【0116】

また、表1は、上記電池A～電池Dの電池1セルあたりの燃料消費量を相対的に示したものである。表1において、「対照」は、燃料極の外側および酸化剤極の外側のいずれにも対策を施さなかった電池であり、この場合を1として各電池の燃料消費量を比較した。

【0117】

【表1】

表1

	対照	A	B	C	D
1セルあたりの相対燃料消費	1	0.6	0.4	0.4	0.8

【0118】

表1より、電池A～電池Dは、燃料の消費が抑制されることがわかる。また、燃料極の外側にPTFEシートが接着されており、酸化剤極の外側にセルロース繊維シートと穴あき金属板が接着されている電池Bおよび電池Cでは、燃料極側と酸化剤極側に施した構成の相乗効果により、さらに相対燃料消費量の低減が可能であることがわかる。

【0119】

以上より、酸化剤極の外側に保水性のセルロース繊維シートおよび穴あき金属板を設けるという簡素な構成で、燃料の浪費を抑制し、長期使用に伴う出力低下を抑制することができた。また、燃料極側に制限透過層、さらに燃料吸収材を設けることにより、燃料の浪費をさらに抑制しつつ、長期間安定な出力が発揮される燃料電池を得ることができた。

【図面の簡単な説明】

【0120】

【図1】本実施形態に係る燃料電池の単セル構造の構成を示す断面図である。

【図2】本実施形態に係る燃料電池の構成を示す上面図である。

【図3】図2のA-A'断面図である。

【図4】図2のA-A'断面図である。

【図5】本実施形態に係る燃料電池の単セル構造の構成を示す断面図である。

【図6】図5の単セル構造を有する燃料電池の構成を示す断面図である。

【図7】図5の単セル構造を有する燃料電池の構成を示す断面図である。

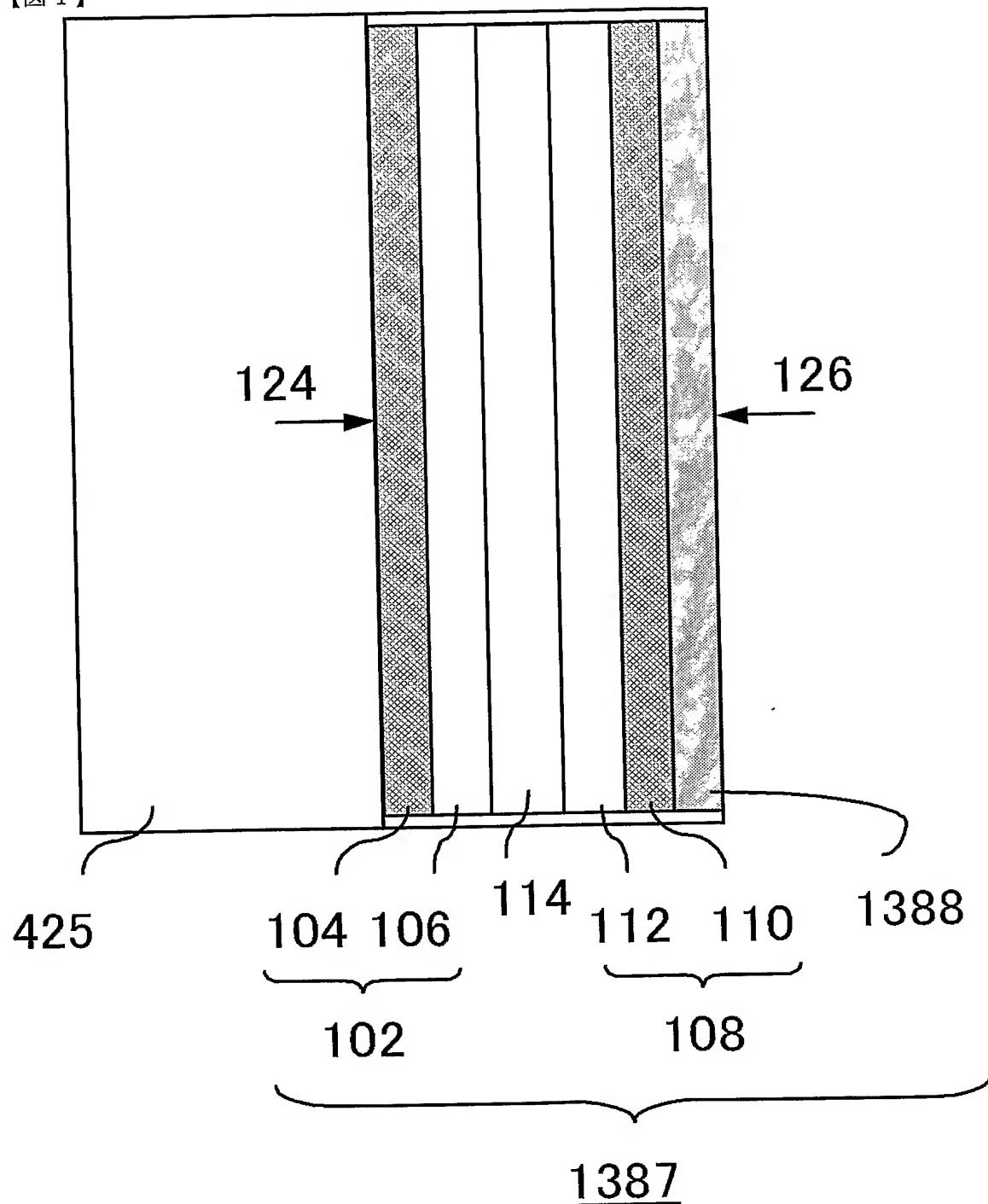
- 【図 8】 図 5 の単セル構造を有する燃料電池の構成を示す断面図である。
- 【図 9】 図 5 の単セル構造を有する燃料電池の構成を示す断面図である。
- 【図 10】 本実施形態に係る単セル構造の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 11】 図 10 の単セル構造を有する燃料電池の構成を示す断面図である。
- 【図 12】 本実施形態に係る単セル構造の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 13】 図 12 の単セル構造を有する燃料電池の構成を示す断面図である。
- 【図 14】 実施例に係る燃料電池の出力特性を示す図である。

## 【符号の説明】

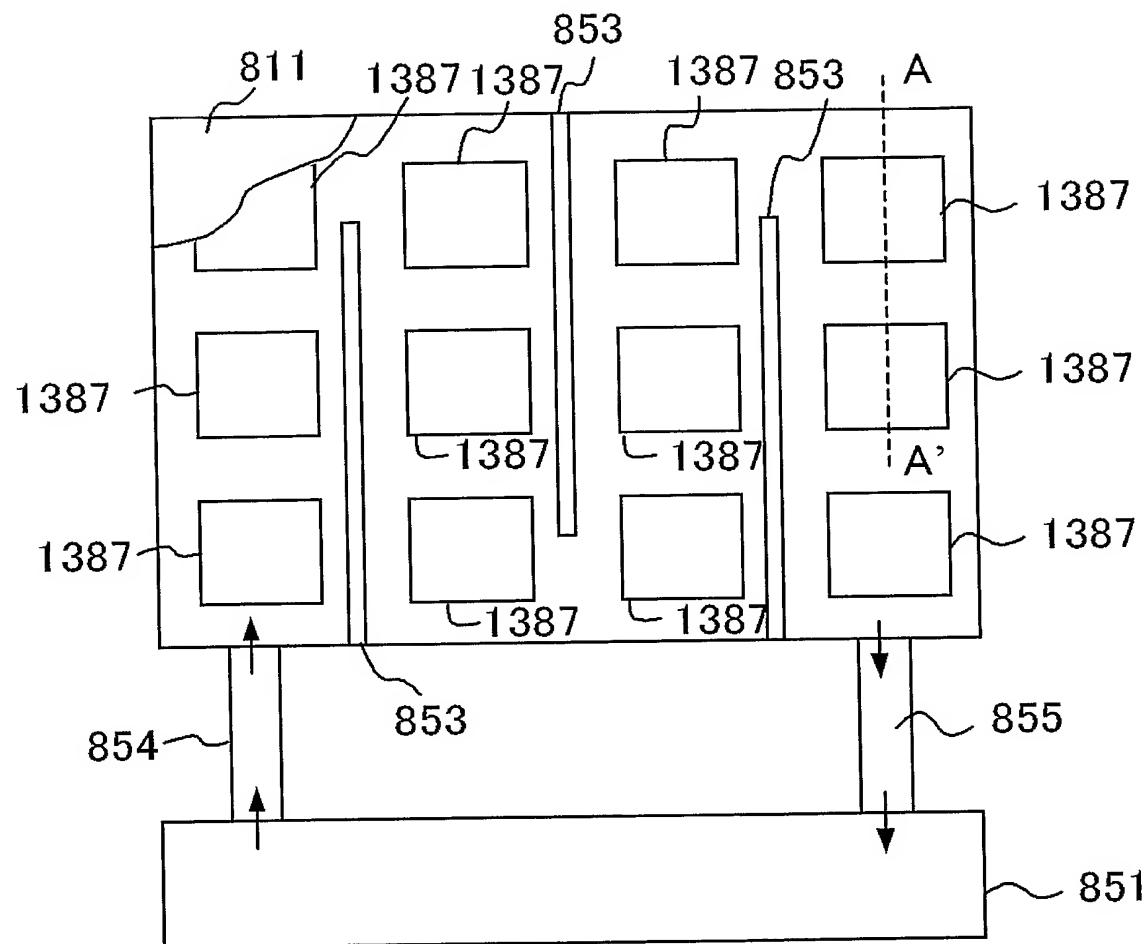
## 【0121】

- 101 単セル構造  
102 燃料極  
104 基体  
106 燃料極側触媒層  
108 酸化剤極  
110 基体  
112 酸化剤極側触媒層  
114 固体電解質膜  
124 燃料  
126 酸化剤  
150 溫度  
425 燃料容器  
811 燃料容器  
851 燃料タンク  
853 仕切板  
854 燃料通路  
855 燃料通路  
1387 単セル構造  
1388 保水層  
1389 燃料電池  
1390 乾燥防止層  
1391 単セル構造  
1392 制限透過層  
1393 単セル構造  
1394 単セル構造  
1395 非接触部  
1396 燃料吸収部  
1397 気液分離膜

【書類名】 図面  
【図 1】

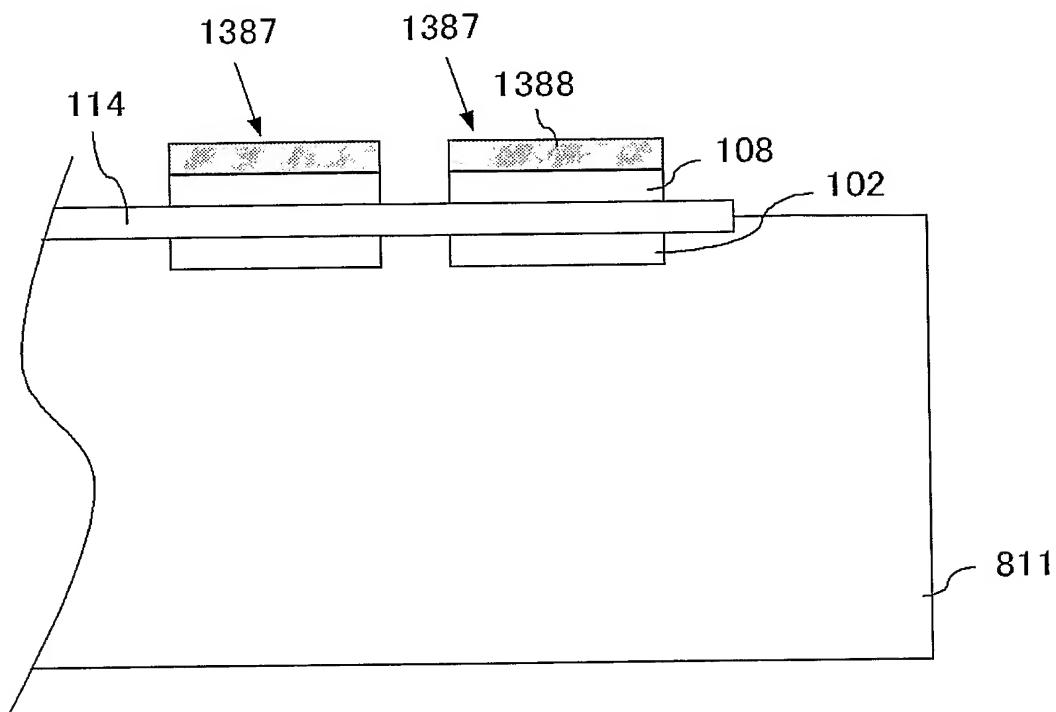


【図2】

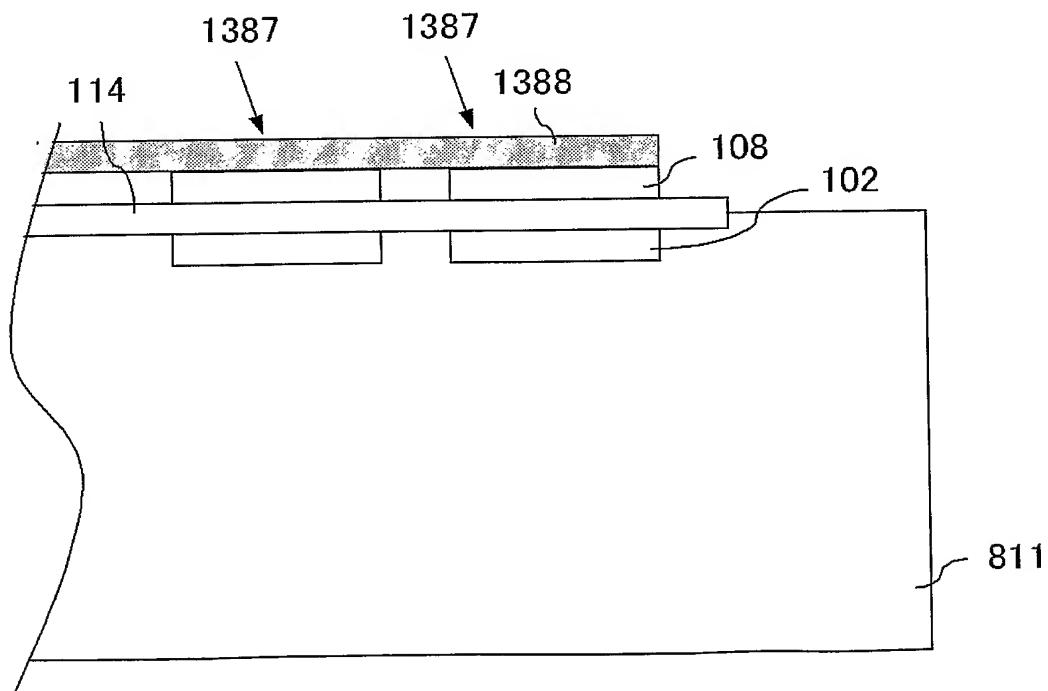


1389

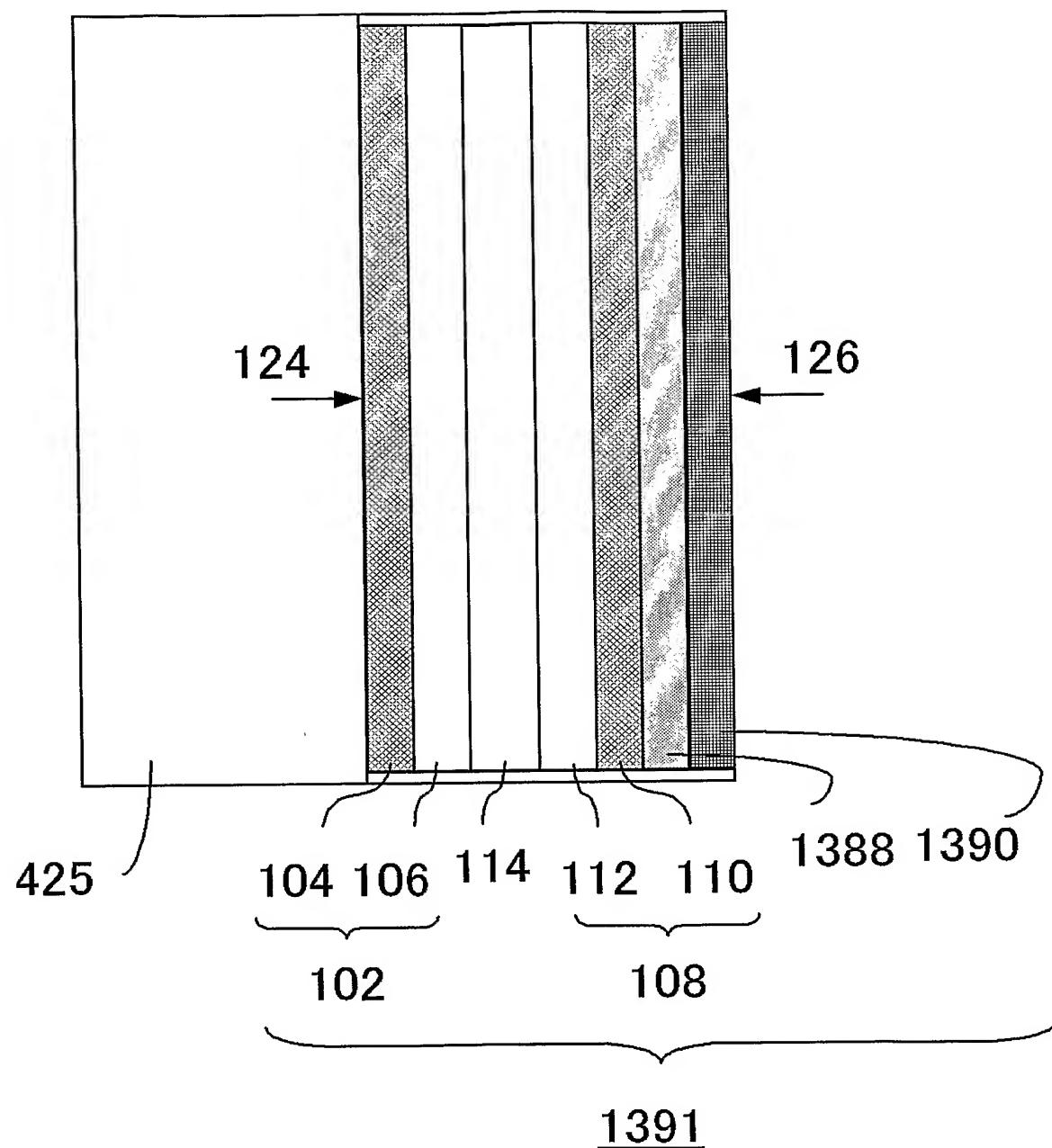
【図3】



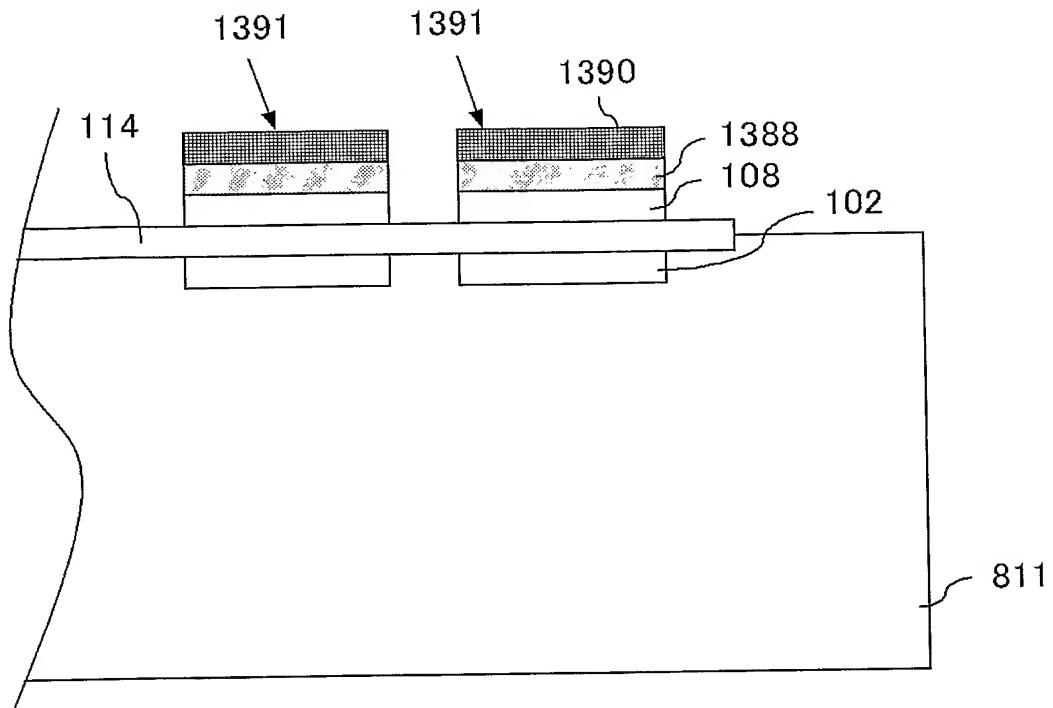
【図4】



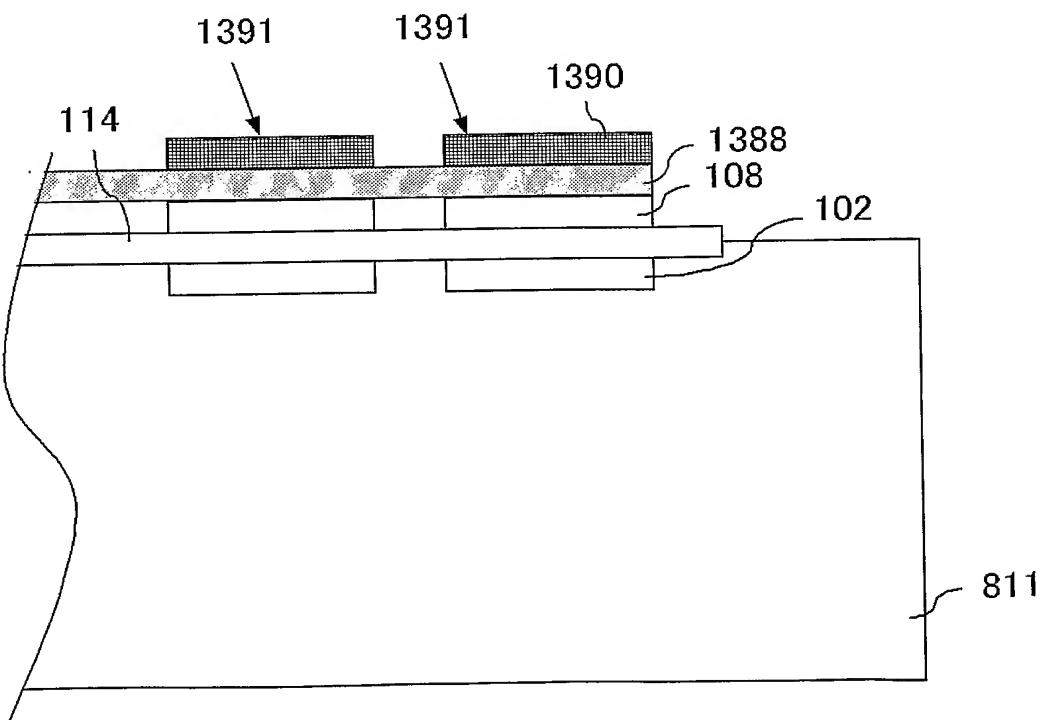
【図5】



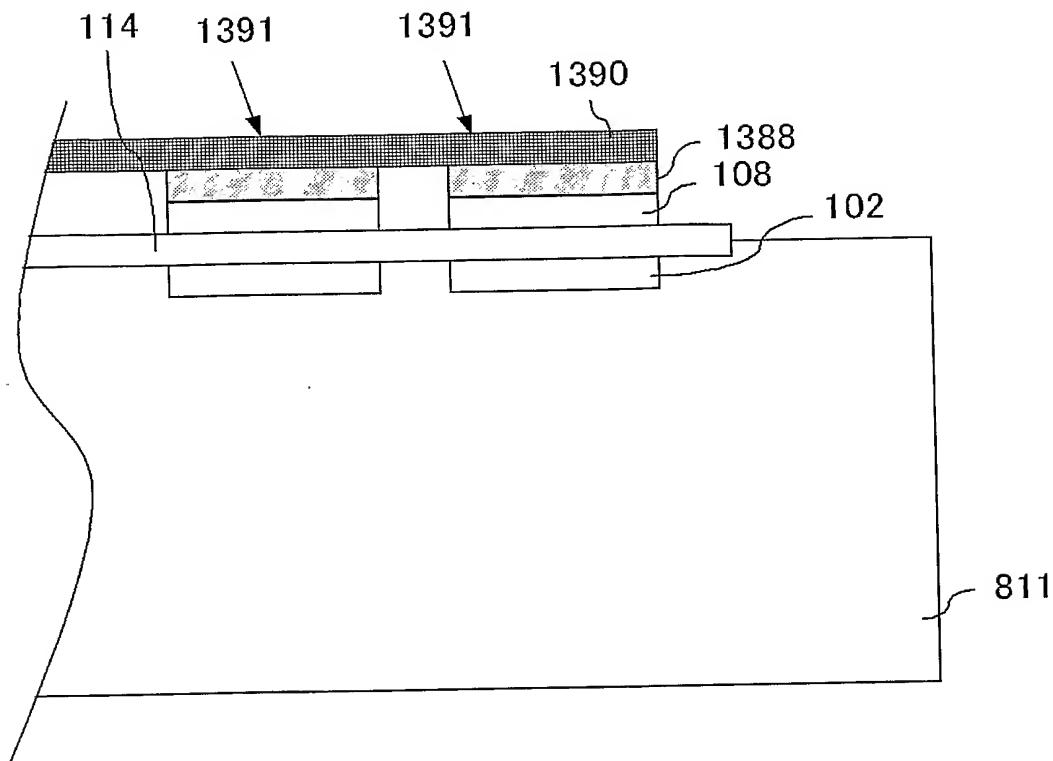
【図6】



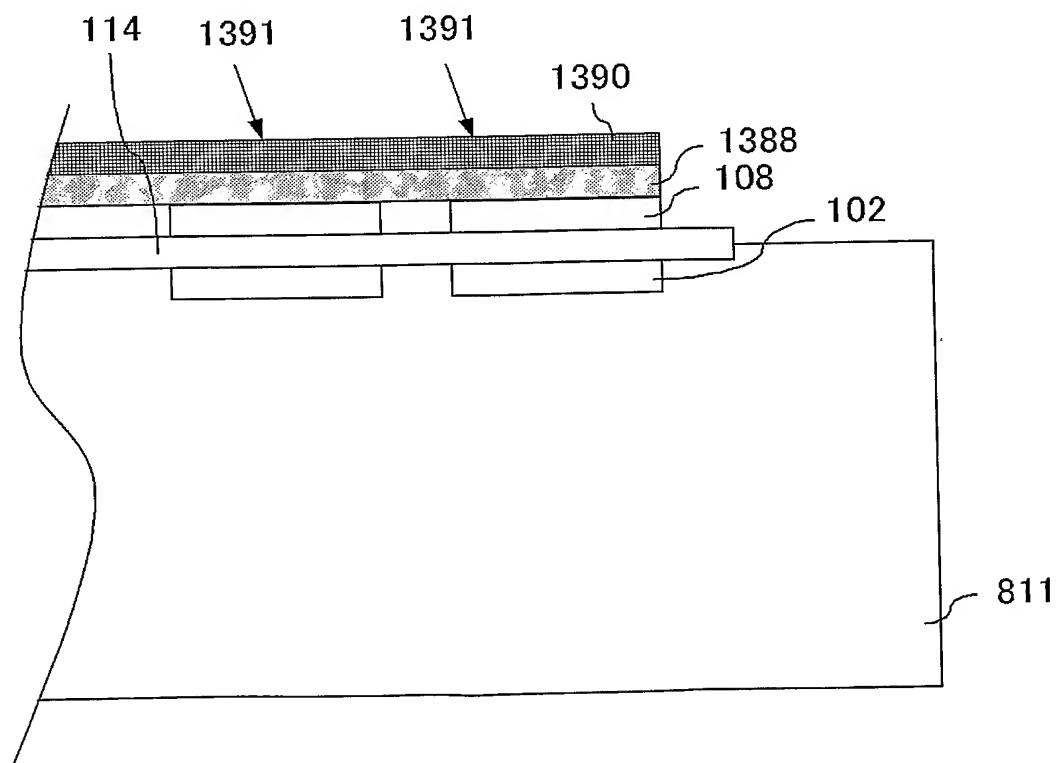
【図7】



【図8】

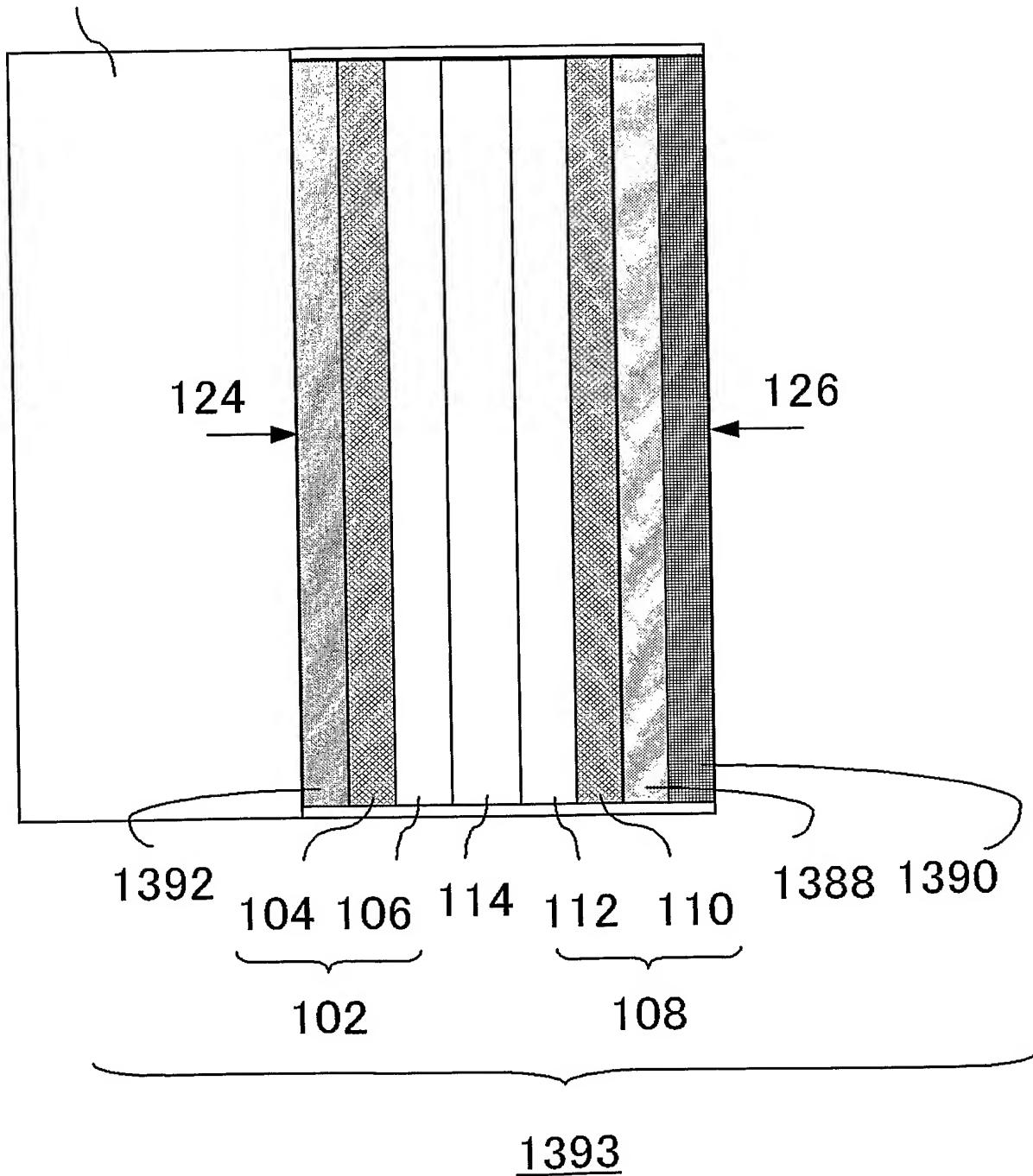


【図9】

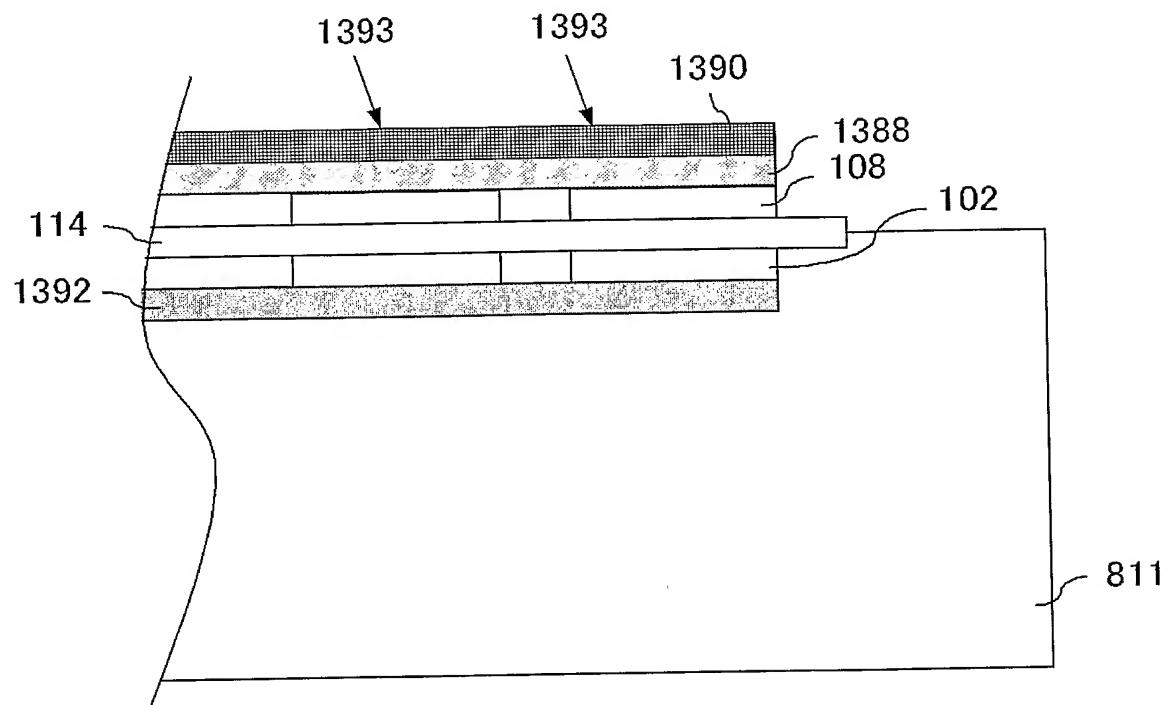


【図10】

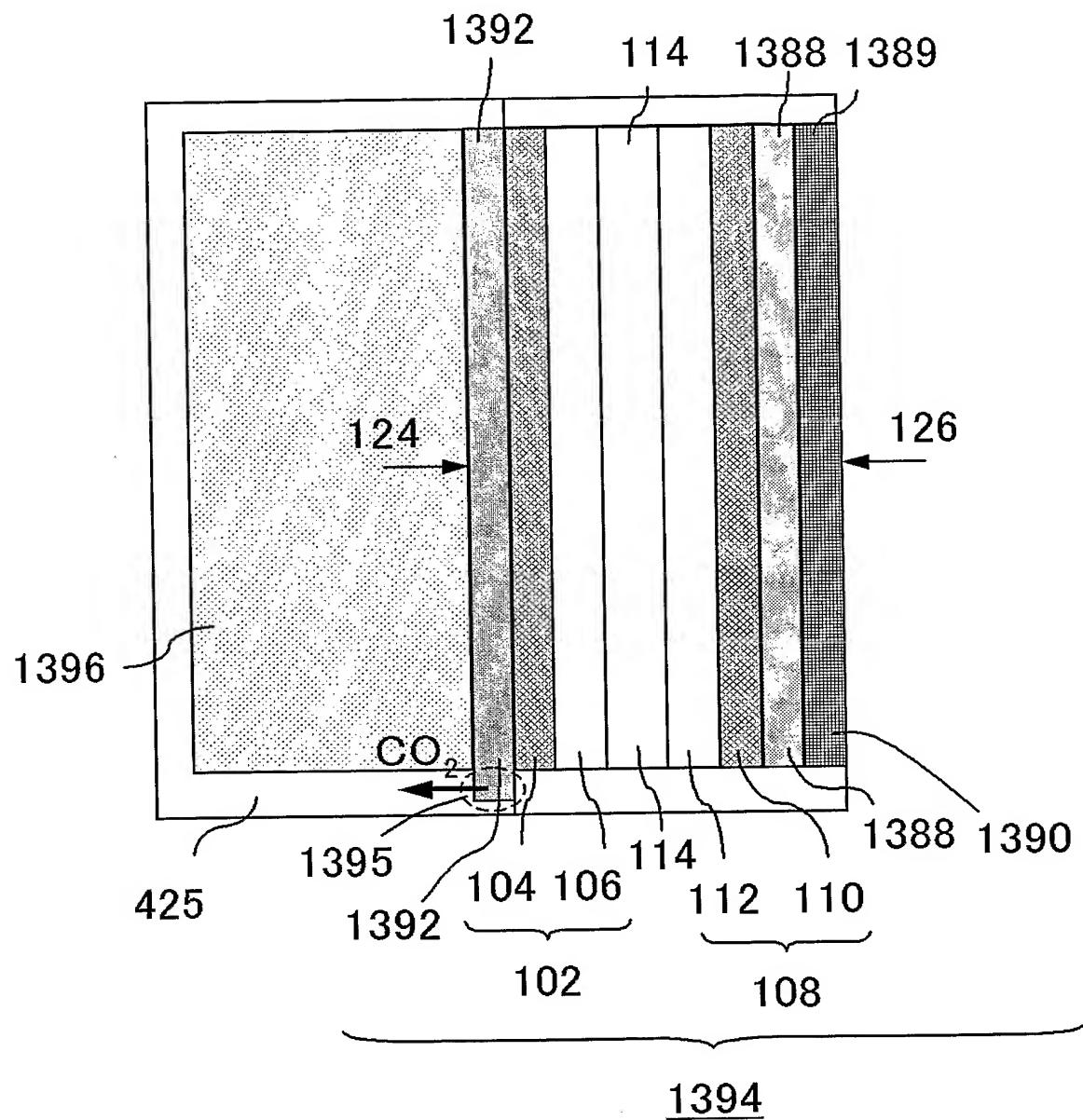
425



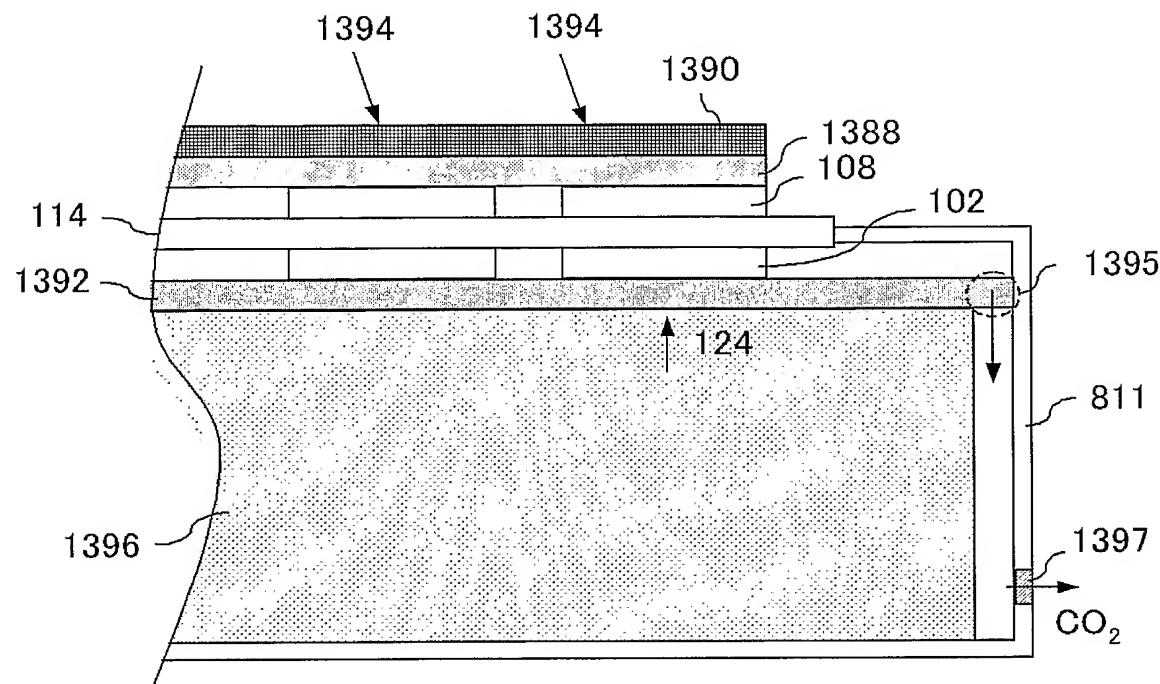
### 【図11】



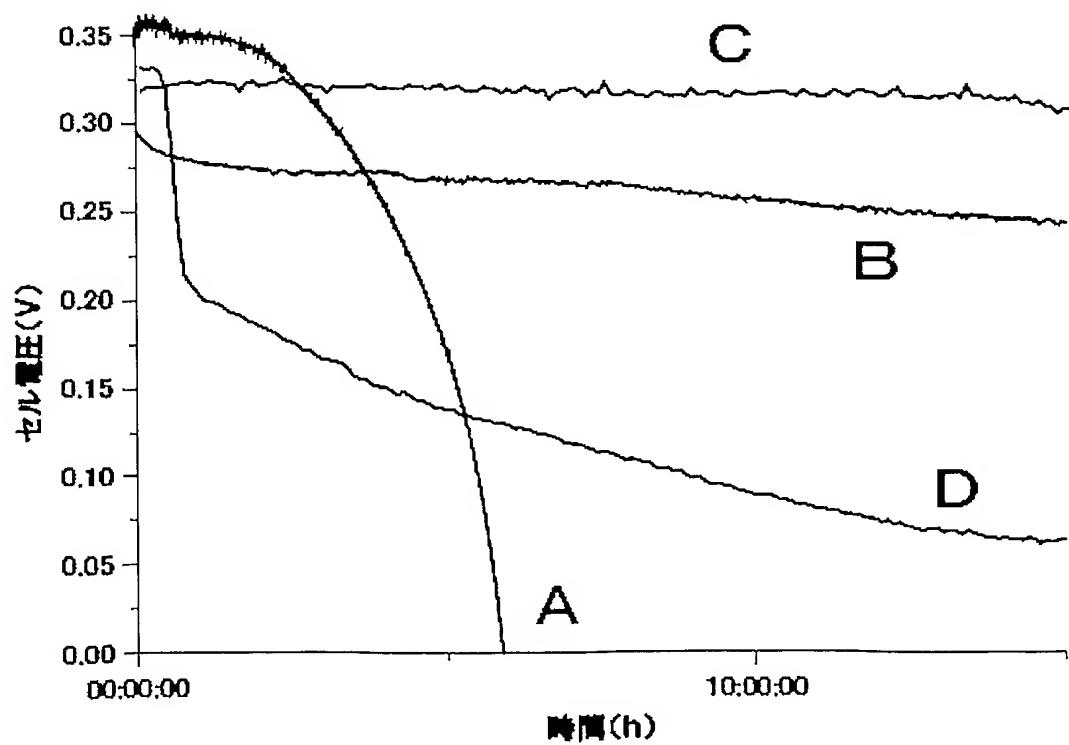
【図12】



【図 13】



【図 14】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】 燃料電池の出力特性を向上させる。

【解決手段】 単セル構造 1387において、固体電解質膜 114の両側に燃料極 102と酸化剤極 108を設け、酸化剤極 108の固体電解質膜 114に接していない面を被覆する保水層 1388を設ける。

【選択図】 図 1

特願 2004-081715

出願人履歴情報

識別番号 [000004237]

1. 変更年月日 1990年 8月29日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都港区芝五丁目7番1号

氏 名 日本電気株式会社